

(19)日本特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-199555

(43)公開日 平成10年(1998)7月31日

(51)Int.Cl.⁸

識別記号

FI

H01M 8/02
8/12H01M 8/02
8/12

S

審査請求 未請求 請求項の数4 FD (全8頁)

(21)出願番号 特願平9-12062

(22)出願日 平成9年(1997)1月6日

(71)出願人 000221834

東邦瓦斯株式会社

愛知県名古屋市中区栄区栄町19番18号

(72)発明者 阿合 雅之

愛知県東海市新宝町507-2 東邦瓦斯株式会社総合技術研究所内

(72)発明者 水谷 安伸

愛知県東海市新宝町507-2 東邦瓦斯株式会社総合技術研究所内

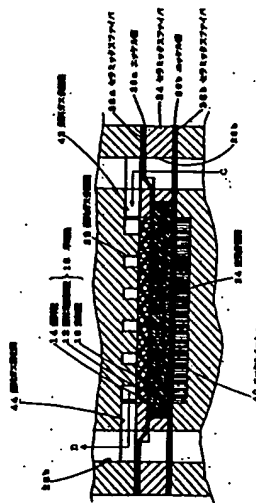
(74)代理人 弁理士 上野 登

(54)【発明の名称】 固体電解質型燃料電池のガスシール構造

(57)【要約】

【課題】 平板積層型の固体電解質型燃料電池において燃料ガスや空気等のガスシール性が良く、発電性能も良好に維持されるガスシール構造を提供すること。

【解決手段】 固体電解質板12の片面に燃料極14を、また反対面に空気極16を設けた単電池18とセパレータ20とを交互に積層して固体電解質型燃料電池を形成するに際し、固体電解質板12の周縁外側に該固体電解質板12より稍々厚肉のセラミックスファイバ34を周設すると共に、該セラミックスファイバ34の上下面に位置してニッケル箔36a、36bを固体電解質板12とセパレータ20との間に介設し、セパレータ20とセラミックスファイバ34とにより挟圧する。



BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体電解質板の片面に燃料極が、また反対面に空気極が設けられた単電池とセパレータとが交互に積層された固体電解質型燃料電池において、前記固体電解質板の周縁外側にガスシール材を周設すると共に、該ガスシール材の上下面に位置して耐熱金属箔もしくは薄板を固体電解質板とセパレータとの間に介設してなることを特徴とする固体電解質型燃料電池のガスシール構造。

【請求項2】 前記ガスシール材の厚み寸法を前記固体電解質板より稍々厚肉とし、前記耐熱金属箔もしくは薄板が前記セパレータとガスシール材とにより挟圧されてなることを特徴とする請求項1に記載される固体電解質型燃料電池のガスシール構造。

【請求項3】 前記ガスシール材は、セラミックスファイバにより構成されていることを特徴とする請求項1又は2に記載される固体電解質型燃料電池のガスシール構造。

【請求項4】 燃料極に供給される燃料ガス、もしくは空気極に供給される空気が前記ガスシール材と非接触の状態の前記燃料極、あるいは空気極へ供給されるように構成されていることを特徴とする請求項1乃至3に記載される固体電解質型燃料電池のガスシール構造。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体電解質板の片面に燃料極が、また反対面に空気極が設けられる単電池がセパレータを介して積層構造をなす固体電解質型燃料電池（SOFC）のガスシール構造に関するものである。

【0002】

【従来の技術】固体電解質型燃料電池（以下「SOFC」と称する）には、いわゆる平板型タイプのものが従来一般的に知られている。図6にその代表的な例として示した平板型SOFCは、固体電解質板100の片面に燃料極102、また、他方の片面に空気極104が設けられた単電池106がセパレータ108を介して多層にわたって積層されている。

【0003】このような形態のSOFCにおいて、燃料極102には燃料ガスが供給され、空気極104には空気が供給されるため、単電池106とセパレータ108との間から燃料ガスや空気が漏れないようにガスシールすることが必要である。図7は、その一例としてのガスシール構造を示している。

【0004】すなわち、図7に示したガスシール構造によれば、固体電解質板100の周縁部の電極以外の領域に固体電解質板100とセパレータ108との間に挟圧されるようにガラスやセラミックスファイバ材料によるガスシール材110が介設され、単電池106は、このガスシール材110を介してセパレータ108、108

…により上下から加圧される構造になっている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、このような構成のガスシール構造によれば、

(1) 平板型SOFCの作動温度が1000℃以上の高温で稼働されるため、ガラス材がその高温の熱によって揮散し、電極材や固体電解質材料と反応して電池の発電性能に悪影響を及ぼすことがある。

(2) セラミックスファイバ材料によるガスシール材は、ガスが透過しやすいため、このガスシール材に直接接触される燃料ガスもしくは空気がこのガスシール材を透過して漏れることがある。

【0006】(3) 固体電解質板及びセパレータ材とガスシール材との熱膨張係数の違いによって昇温時や降温時に夫々の材料自身に、あるいは各材料間の接触面に応力が発生し、ガスシール部に亀裂が入ることがある。このため、サーマルサイクル条件下におけるガスシールの信頼性の確保が困難である。

(4) また、ガスシール性能を上げるため、積層電池を上下から加圧すれば、単電池の特に固体電解質板にわずかな歪や反りがあっても応力が発生するため、単電池の割れにつながりやすいという問題もある。

【0007】本発明の解決しようとする課題は、平板型のSOFCにおいて燃料ガスや空気等のガスシール性が良く、発電性能も良好に維持されるガスシール構造を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】この課題を解決するために本発明は、固体電解質板の片面に燃料極が、また反対面に空気極が設けられた単電池とセパレータとが交互に積層された固体電解質型燃料電池において、前記固体電解質板の周縁外側にセラミックスファイバからなるガスシール材を周設すると共に、該ガスシール材の上下面に位置して耐熱金属箔もしくは薄板を固体電解質板とセパレータとの間に介設してなることを要旨とするものである。この場合に、前記ガスシール材の厚み寸法は前記固体電解質板より稍々厚肉とし、前記耐熱金属箔は前記セパレータとガスシール材とにより挟圧されてなることが望ましい。

【0009】上記構成を有する固体電解質型燃料電池のガスシール構造によれば、燃料極に供給される燃料ガスあるいは空気極から供給される空気は、前記ガスシール材の上下面に位置した耐熱金属箔もしくは薄板により該ガスシール材と非接触の状態の燃料極、あるいは空気極へ供給される。このときに、ガスシール材の厚み寸法は、固体電解質板より稍々厚肉とされたことから該固体電解質板において発生する応力による衝撃が該ガスシール材により吸収されると共に、耐熱金属箔もしくは薄板は、セパレータとガスシール材により挟圧されたことから燃料ガス、あるいは空気の漏れが完全に防止されることになる。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好適な一実施の形態を図面を参照して詳細に説明する。図1は、本発明の一実施の形態に係る固体電解質型燃料電池（SOFC）の構造を概念的に示した分解斜視図である。同図に示したSOFC10は、固体電解質板12、12…の一方の面には燃料極14、14…、他方の面には空気極16、16…が設けられた単電池18、18…とセパレータ20、20…とが交互に積層されたものである。

【0011】そして固体電解質板12、12…の燃料極14、14…と対向するセパレータ20、20…の面には多本数の溝からなる燃料ガス分配路22、22…が形成され、固体電解質板12、12…の空気極16、16…と対向するその反対側の面には多本数の溝からなる空気分配路24、24…が形成されている。これら燃料ガス分配路22、22…と空気分配路24、24…とは、夫々の分配路を流れる燃料ガスと空気とが直交流をなす方向関係に形成されている。

【0012】また、各セパレータ20、20…の燃料ガス分配路22、22…は互いに平行に、同じく各セパレータ20、20…の空気分配路24、24…も互いに平行に形成されている。そして上記した単電池18、18…は、該燃料ガス分配路22、22…と空気分配路24、24…とが交差する領域内に配設されている。

【0013】このように多くの溝が配されたセパレータ20、20…には、その本体の一方の対向縁寄り部位に燃料極14、14…へ燃料ガスを供給するための燃料ガス供給孔26a、26b、26cと、反応した後の燃料ガスを排出するための燃料ガス排出孔28a、28b、28cとが形成され、その他方の対向縁寄り部位には、空気極16、16…へ空気を供給するための空気供給孔30a、30b、30cと、反応した後の空気を排出するための空気排出孔32a、32b、32cとが形成されている。

【0014】かくして、空気供給孔30a、30b、30c、空気分配路24、空気排出孔32a、32b、32cは連通して設けられ、また、燃料ガス供給孔26a、26b、26c、燃料ガス分配路22、燃料ガス排出孔28a、28b、28cは、連通して設けられる。

【0015】次に、SOFC10のガスシール構造について図2及び図3に示した要部断面構造を参照して詳細に説明する。図2は、図1に示した線A-A'についての部分断面を拡大して示した図であり、図3は、同じく図1に示した線B-B'についての部分断面を拡大して示した図である。セパレータ20に形成された燃料ガス分配路22、22…と空気分配路24、24…とは全く同じ形態を有するものであるが、交差して配設されていることから、これらの部分断面は、図示した形態を呈している。

【0016】まず、同図に示したように固体電解質板1

2、12…は、その寸法サイズが両電極に較べてほんの少し大きめで、その厚さが300 μ m程度に形成されている。燃料極14、14…（アノード：－極）は、その厚さが30～50 μ m程度に形成され、該燃料極14、14…の燃料ガスと接触する部分には、導電性を向上させるために厚さが150 μ m程度のニッケルメッシュ40が該燃料極14、14…と同一の寸法サイズで作製され、セパレータ20と燃料極14との間に介設されている。また、空気極16、16…（カソード：＋極）は、固体電解質板12の燃料極14の丁度反対側に対向して形成されており、その厚さは50 μ m程度に、また、寸法サイズは燃料極14と同じくして形成されている。

【0017】この単電池18、18…とセパレータ20、20…とは交互に多層にわたって積層されるものであるが、このときに、単電池18、18…に両電極が形成された部分の寸法サイズが該燃料ガス分配路22、22…と空気分配路24、24…とが交差する領域内に納まる大きさであることから、単電池18、18…を挟んでいるセパレータ20、20…の間に隙間ができないようにガスシール部材が配置される。

【0018】このガスシール部材としては、同図に示したように、単電池18、18…を構成する固体電解質板12、12…の周縁外側にはセパレータ20、20…と外形寸法が同一に形成されたセラミックスファイバ34が単電池18の側縁縁を当接した状態で囲むべく周設される。このセラミックスファイバ34は、固体電解質板12、12…よりも稍々厚肉（300 μ m～450 μ m程度）に形成されている。そして、単電池18、18…とセラミックスファイバ34（図4（b）参照）との当接部分の上面及び下面を含む部位、すなわち、固体電解質板12、12…とセパレータ20、20…との間に相当する部位には、該セラミックスファイバ34の上下面に位置してニッケル箔36a、36b（図4（a）参照）が介設され、該ニッケル箔36a、36bの上下面に各々位置して、セラミックスファイバ38a、38b（図4（a）参照）が介設されている。

【0019】かくして、両電極材よりほんの少し大きめに形成された固体電解質板12の該両電極材が形成されていない端縁周辺部分とセラミックスファイバ34との当接部分、及び該固体電解質板12の周縁外側に相当する該セラミックスファイバ34の端縁周辺部分の上下面は、ニッケル箔36a、36b及びセラミックスファイバ38a、38bを介してセパレータ20、20により上下から挟み込まれる。これにより、ガスシール構造が形成され、ニッケル箔36a、36bは、セパレータ20、20…とセラミックスファイバ34とにより挟圧されることになる。

【0020】セラミックスファイバ34、セラミックスファイバ38a、38bは、弾力性に富んでいるため、稼動時における各材料間の熱膨張係数の差によって発生

する熱応力や何等かの外力による衝撃を吸収して単電池18、18…に与える負荷を大幅に減少させるように機能する。また、ニッケル箱36a、36bは、燃料ガスや空気を透過しないため、燃料ガスや空気が外部へ漏れるのを完全に防ぐことができる。

【0021】そして、矢示するC及びD方向は、燃料ガスが流れる方向を示しており、これによって、燃料ガス供給孔26a、26b、26cから導入された燃料ガスは、燃料ガス供給路42を介して燃料ガス分配路22に流れ込み、電極反応に供された後、燃料ガス排出路44を介して燃料ガス排出孔28a、28b、28cから排出される経路が示されている。また、燃料ガスと燃料極14、14…とが接触する部位の構造が示されている。一方、空気分配路24、24…を流れる空気は図示された多くの溝を通過して手前から奥へ向かって流れるようになっている。

【0022】一方、図3において、矢示するE及びF方向は、空気が流れる方向を示しており、これによって、空気供給孔30a、30b、30cから導入された空気は、空気供給路46を介して空気分配路24に流れ込み、電極反応に供された後、空気排出路48を介して空気排出孔32a、32b、32cから排出される経路が示されている。また、空気と空気極16、16…とが接触する部位の構造が示されている。一方、燃料ガス分配路22、22…を流れる燃料ガスは図示された多くの溝を通過して手前から奥へ向かって流れるようになっている。

【0023】これら図1乃至図3において、固体電解質板12、12…は、イットリア安定化ジルコニア(Y_2O_3 Stabilized ZrO_2) 材料あるいはスカンジウム安定化ジルコニア(Sc_2O_3 Stabilized ZrO_2) 材料により形成され、燃料極14、14…は、ニッケル-サーメット系(Ni-YSZ) 材料により形成され、空気極16、16…は、ランタンストロンチウムマンガンナイト系($LaSrMnO_3$) 材料により形成されている。また、セパレータ20、20…は、ランタンクロマイト系材料により形成されている。

【0024】図4(a)は、上述したニッケル箱36a、36b及びセラミックスファイバ38a、38bの平面形態を示す図であり、中央部には単電池18、18…が納まる寸法サイズ、すなわち、燃料極14(空気極16)が納まる寸法サイズの孔が設けられるとともに、セパレータ20に設けられた端縁周辺部の燃料ガス供給孔26a、26b、26c、燃料ガス排出孔28a、28b、28c、空気供給孔30a、30b、30c、空気排出孔32a、32b、32cに対応するところには長方形の孔が四つ設けられている。

【0025】また、図4(b)は、上述したセラミックスファイバ34の平面形態を示す図であり、中央部には

単電池18、18…を構成する固体電解質板12、12…が納まる寸法サイズの孔が設けられるとともに、セパレータ20に設けられた端縁周辺部の燃料ガス供給孔26a、26b、26c、燃料ガス排出孔28a、28b、28c、空気供給孔30a、30b、30c、空気排出孔32a、32b、32cに対応するところには長方形の孔が四つ設けられている。

【0026】図5(a)及び(b)はセパレータ20、20…の平面形態を示す図である。図5(a)は、空気分配路24、24…が形成された平面を示す図であり、図5(b)は、図5(a)に示したセパレータ20、20…をそのまま裏がえした形態を示す図であり、燃料ガス分配路22、22…が形成されている。そして、これらに図示する線A-A'及び線B-B'は、図1に示した各線を示している。端縁周辺部には、上述した燃料ガス供給孔26a、26b、26c、燃料ガス排出孔28a、28b、28c、空気供給孔30a、30b、30c及び空気排出孔32a、32b、32c、燃料ガス供給路42、燃料ガス排出路44、空気供給路46、空気排出路48が形成されている。

【0027】かくしてこのように構成されるSOFC10の発電メカニズムは次の通りである。すなわち、電極反応用空気が空気供給孔30a、30b、30cを通過して空気供給路46から空気分配路24、24…へ導入されるが、この空気の導入は、固体電解質板12の周縁外側にセラミックスファイバ34が周設されたことにより、空気供給孔30a、30b、30cを通る空気によって固体電解質板12が加圧されることなくされる。また、各材料間の熱膨張係数の違いによって発生する応力は、セラミックスファイバ34、38a、38b等によって吸収される。さらに、挟圧状態で介設されたニッケル箱36a、36bは、導入された空気の外部への漏れを防止している。

【0028】そして、該空気は、溝に沿って流れて単電池18、18…の空気極16、16…に接触する。これにより、その空気極16、16…で酸素イオン(O^{2-})が生成され、この酸素イオン(O^{2-})が固体電解質板12、12…を移動して反対面側の燃料極14、14…に到達する。

【0029】一方、燃料ガスは、燃料ガス供給孔26a、26b、26cを通過して燃料ガス供給路42から燃料ガス分配路22、22…へ導入されるが、この導入もやはり、固体電解質板12の周縁外側にセラミックスファイバ34が周設されたことにより、固体電解質板12がこの燃料ガス供給孔26a、26b、26cを通る燃料ガスによって、ガス圧を受けることなくされる。こうして導入された燃料ガスは、該燃料ガス分配路22、22…によって案内される方向に従って流れ、これにより、各セパレータ20、20…における燃料ガス流の方向は、上述した空気流の方向に対しては直交する方向に

なる。また、各材料間において発生する応力も同じく、セラミックスファイバ34、38a、38b等によって吸収される。

【0030】この燃料ガス中の水素ガス(H_2)は、空気極側より移動してきた酸素イオン(O^{2-})と反応して水蒸気(H_2O)となり電子を放出する。これにより発電状態が得られるが、このときにSOFCは、高温環境下に置かれることになるが、セラミックスファイバ34の上下面に位置してニッケル層36a、36bが介設されたことにより、このSOFCは、水素ガス(H_2)や空気が該セラミックスファイバ34とは非接触の状態と移動することになる。これにより、ガラスやセラミックスファイバ34がその高温で弾散する状況は回避されている。

【0031】また、このように水蒸気(H_2O)が発生すると、固体電解質板12、12...やセパレータ20、20...等の夫々の部材は、ガス圧を受けることになるが、固体電解質板12、12...は両電極と略同一の大きさで穴加工が施されることなく作成されているため、SOFC10は全体として高いガス圧にも耐え得る。また、燃料ガスや空気の供給孔並びにそれらの排出孔はセパレータのみに設けられているためガスの給排気によるガス流の固体電解質板12、12...への影響を低減させた状態で発電状態が得られるようになる。

【0032】以上説明した本発明の一実施例によれば、以下(1)乃至(3)に示した効果が期待されるものである。すなわち、

(1) 作動温度1000℃以上の高温で移動しても、ガスシール材の上下面に位置してニッケル層を介設したため、その高温の熱にガスシール材が直接接触することによって弾散することがなく、ガスシール材が電極材や固体電解質材料と反応して電池の発電性能に影響を及ぼすことがない。

(2) ガスシール材の一部として、ガスの透過を完全に防止することができるニッケル層を適用し、これをセパレータとセラミックスファイバとにより挟圧したことにより、燃料ガスもしくは空気の漏れを防止することができる。

【0033】(3) セラミックスファイバの厚み寸法が固体電解質板より稍々厚肉とされたので、固体電解質板及びセパレータ材とガスシール材との熱膨張係数の違いによって昇温時や降温時に夫々の材料自身に、あるいは各材料間の接触面に応力が発生しても、セラミックスファイバには弾力性があるため、固体電解質板とセパレータの熱膨張係数の差による歪みが吸収され、ガスシール部の亀裂発生が防止される。これにより、サーマルサイクル条件下におけるガスシールの信頼性の確保が容易になる。

【0034】尚、本発明は、上記した実施の形態に何ら限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範

围で種々の改変が可能である。例えば、上記の実施例においては、燃料ガスや空気の給排気孔をセパレータの四隅位置に設けたが、これを四隅各部に設けてガスシール構造を形成するようにしてもよいし、ニッケル層の代わりにニッケル層板を適用してもよい。

【0035】

【発明の効果】本発明の固体電解質型燃料電池(SOFC)のガスシール構造によれば、固体電解質板の周縁外側にセラミックスファイバからなるガスシール材を周設すると共に、ガスシール材の上下面に位置して耐熱金属層を固体電解質板とセパレータとの間に介設したので、燃料極に供給される燃料ガス、あるいは空気極から供給される空気は、その耐熱金属層により該ガスシール材と非接触の状態と該燃料極、あるいは空気極へ供給される。これにより、高温ガスとの接触によるガスシール材の弾散が防止され、ガスシール性が向上し、発電性能も良好に維持され得る。したがって、固体電解質型燃料電池(SOFC)としての寿命の延長が期待されるものであり、その産業上の有益性は大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態に係る平板型固体電解質型燃料電池(SOFC)の積層構造を概念的に示す分解斜視図である。

【図2】図1に示したSOFCのガスシール構造を示す要部の拡大断面図である。

【図3】同じく図1に示したSOFCのガスシール構造を示す要部の拡大断面図である。

【図4】(a)は、ニッケル層36a、36b及びセラミックスファイバ38a、38bの平面図、(b)は、セラミックスファイバ34の平面図である。

【図5】(a)は、空気分配路がある側のセパレータ面の形態を示した図であり、(b)は、燃料ガス分配路がある側のセパレータ面の形態を示した図である。

【図6】従来一般的に知られる平板型積層構造の固体電解質型燃料電池(SOFC)の外観斜視図である。

【図7】図6に示した線G-G'についての部分断面図である。

【符号の説明】

10 固体電解質型燃料電池(SOFC)

12 固体電解質板

14 燃料極

16 空気極

18 単電池

20 セパレータ

22 燃料ガス分配路

24 空気分配路

26a、26b、26c 燃料ガス供給孔

28a、28b、28c 燃料ガス排出孔

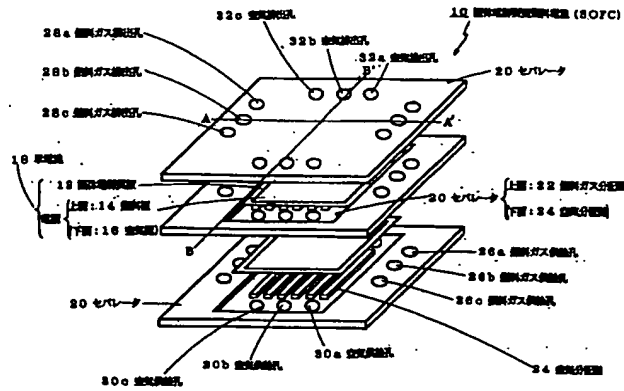
30a、30b、30c 空気供給孔

32a、32b、32c 空気排出孔

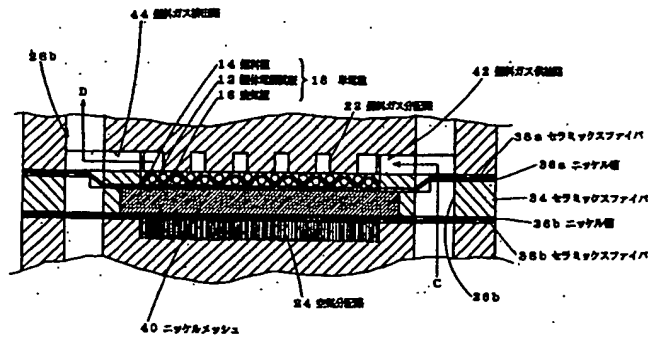
34, 38a, 38b セラミックスファイバ
 36a, 36b ニッケル箔
 40 ニッケルメッシュ
 42 燃料ガス供給路

44 燃料ガス排出路
 46 空気供給路
 48 空気排出路

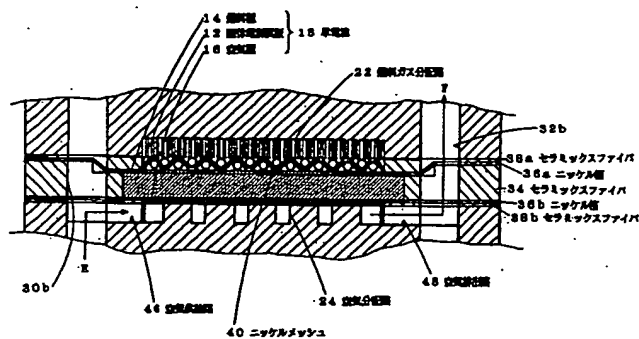
【図1】



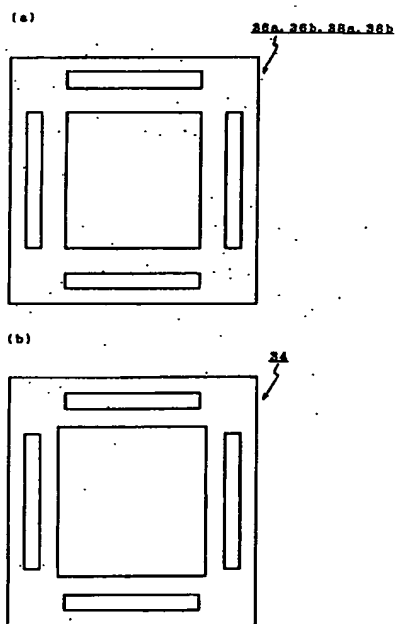
【図2】



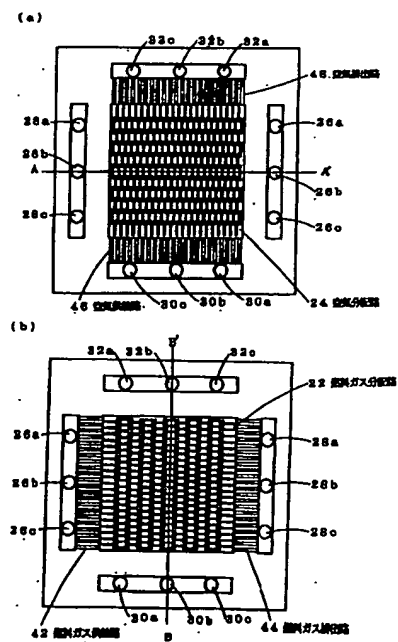
【図3】



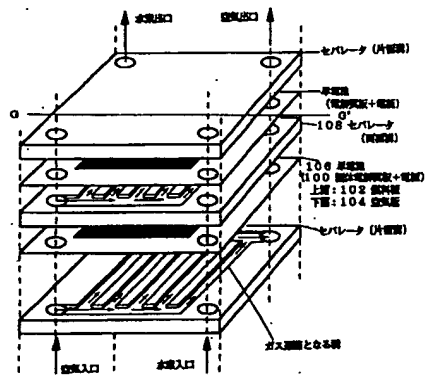
【図4】



【図5】



【図6】



【図7】

